

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Hideaki SAKAI, et al

SERIAL NO: 10/014,449

FILED: December 14, 2001

FOR: FAT COMPOSITION

GAU: 1761

EXAMINER: Carolyn Paden



REQUEST FOR PRIORITY

COMMISSIONER FOR PATENTS
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number _____, filed _____, is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date(s) of U.S. Provisional Application(s) is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e):
Application No. Date Filed

- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
Japan	11-169404	June 16, 1999
Japan	11-295302	October 18, 1999

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. _____ filed _____
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number _____
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. _____ filed _____; and
- ☐ (B) Application Serial No.(s) _____
☐ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.
Norman F. Oblon

Norman F. Oblon

Registration No. 24,618

Joseph A. Scafetta, Jr.
Registration No. 26, 803

Customer Number

22850

Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 05/03)

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 1 9 9 9 年 6 月 1 6 日
Date of Application:

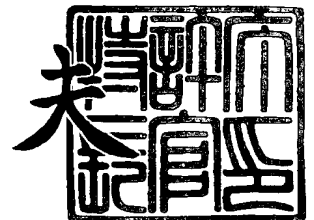
出 願 番 号 平成 1 1 年特許願第 1 6 9 4 0 4 号
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 1 9 9 9 - 1 6 9 4 0 4]

出 願 人 花王株式会社
Applicant(s):

2 0 0 4 年 4 月 9 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特 2 0 0 4 - 3 0 2 9 6 3 7

【書類名】 特許願

【整理番号】 P02401106

【提出日】 平成11年 6月16日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 A23D 9/00

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内

 【氏名】 坂井 秀昭

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内

 【氏名】 石橋 稔

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内

 【氏名】 小堀 純

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2 - 1 - 3 花王株式会社研究所内

 【氏名】 稲田 勝彦

【特許出願人】

 【識別番号】 000000918

 【氏名又は名称】 花王株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100068700

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 有賀 三幸

【選任した代理人】

 【識別番号】 100077562

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 高野 登志雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100096736

【弁理士】

【氏名又は名称】 中嶋 俊夫

【選任した代理人】

【識別番号】 100101317

【弁理士】

【氏名又は名称】 的場 ひろみ

【選任した代理人】

【識別番号】 100106909

【弁理士】

【氏名又は名称】 棚井 澄雄

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011752

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 油脂組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ジグリセリド含量が 1 5 重量%以上の油脂、L-アスコルビン酸脂肪酸エステル及びカテキンを含有する油脂組成物。

【請求項 2】 さらに、シリコーンを含有する請求項 1 記載の油脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、酸化安定性及び風味、外観に優れたジグリセリド含有油脂組成物に関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

ジグリセリドは、トリグリセリドと同様に長時間の加熱や保存により酸化される。ジグリセリドの酸化安定性を向上させたものとして例えば以下の油脂組成物が知られている。ジグリセリド高含有油脂に、アスコルビルパルミテート及びトコフェロールを添加した液状汎用型油脂組成物（特開平 1 0 - 1 7 6 1 8 1 号公報）、ジグリセリドにカテキンを配合した食用油脂組成物（特開平 4 - 9 6 9 9 2 号公報）。

【0 0 0 3】

【発明が解決しようとする課題】

しかし、上記油脂組成物の酸化安定性は、家庭用食用油脂としては十分であるが、より過酷な条件で使用する業務用油脂としては必ずしも十分でなかった。また、上記油脂組成物の酸化安定性をさらに向上させるため、アスコルビルパルミテート、トコフェロールや、カテキン量を増加させると、これらの有する風味、色調により、油脂の風味、外観が劣化してしまうという問題があった。

【0 0 0 4】

したがって本発明は、酸化安定性に優れるとともに、風味、外観にも優れたジグリセリドを含有する油脂組成物を提供することを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明は、ジグリセリド含量が15重量%（以下、単に「%」と表記する。）以上の油脂、L-アスコルビン酸脂肪酸エステル及びカテキンを含有する油脂組成物を提供することにより上記目的を達成した。

【0006】

【発明の実施の形態】

本発明の油脂組成物は、カテキンとL-アスコルビン酸脂肪酸エステルを併用することにより、ジグリセリド含有油脂の酸化安定性が飛躍的に向上したものである。カテキンと、トコフェロールを併用したL-アスコルビン酸脂肪酸エステルは、それぞれジグリセリド含有油脂の酸化安定性をある程度向上させることができるが、酸化安定性をさらに向上させるために、配合量を増加させると、油脂の外観、風味が低下するという問題があった。しかし、カテキンとL-アスコルビン酸脂肪酸エステルとを併用してジグリセリド含有油脂に配合することにより、両成分が相乗的に作用し、その結果少量で油脂の酸化安定性を飛躍的に向上させることができること、さらに配合量を抑制できるため、ジグリセリド含有油脂に酸味、渋味や着色が生じることがなく、その結果食用油として良好な油脂組成物が得られるということは、全く知られていなかった。両成分が、ジグリセリド含有油脂において相乗的に作用する原因については必ずしも明確ではないが、カテキン及びL-アスコルビン酸脂肪酸エステルの極性は、トコフェロールの極性と比べて、ジグリセリドの極性に近く、ジグリセリドに比較的溶解しやすいため、ジグリセリド中で抗酸化剤としての作用を発揮しやすいことが要因の1つと推測される。

【0007】

本発明に用いる油脂は、ジグリセリド含量が15%以上、さらに30%以上、特に50%を超えることが好ましい。モノグリセリド含量は、2%以下、特に1.5%以下が好ましい。特にジグリセリド含量が50%超であれば、酸化安定性が一段と向上するとともに天ぷら、フライ、マーガリン、マヨネーズ、ドレッシング等に、体に脂肪がつきにくい食品材料として使用できる。

【0 0 0 8】

ジグリセリドを構成するアシル基の炭素数は、8～24、特に16～22であることが好ましい。また不飽和のアシル基の量は、全アシル基の55%以上が好ましく、70%以上がより好ましく、90%以上が特に好ましい。ジグリセリドは、油脂とグリセリンとのエステル交換反応、又は油脂由来の脂肪酸とグリセリンとのエステル化反応等任意の方法により得られる。反応方法は、アルカリ触媒等を用いた化学反応法、リパーゼ等の油脂加水分解酵素を用いた生化学反応法のいずれでもよい。

【0 0 0 9】

油脂としては、大豆油、ナタネ油、パーム油、米油、コーン油等の植物油、牛脂、魚油等の動物油、或いはそれらの硬化油、分別油、ランダムエステル交換油等が挙げられる。常温にて固体状の例えばパーム油、或いは種々の油脂の硬化油等を利用すればジグリセリド含有油脂の酸化安定性はさらに向上し、さらにその油脂にてフライされた製品表面の油じみも抑制される等の効果も期待され好ましい。

【0 0 1 0】

カテキンは、ピロガロール型、カテコール型のいずれでもよく、例えばエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート、エピガロカテキンガレート等が挙げられ、これらを1種以上用いることができる。また茶葉等のカテキン含有植物を、水や、エタノール、クロロホルム等の有機溶媒で抽出し、得られたエキスを、適宜濃縮、乾燥して用いてもよい。

【0 0 1 1】

Ｌ－アスコルビン酸脂肪酸エステルは、ジグリセリド含有油脂組成物に溶解するものが好ましく、高級脂肪酸エステル、例えばアシル基の炭素数が12～22のものがより好ましく、Ｌ－アスコルビン酸パルミテート、Ｌ－アスコルビン酸ステアレートが特に好ましく、Ｌ－アスコルビン酸パルミテートが最も好ましい。

【0 0 1 2】

カテキン及びＬ－アスコルビン酸脂肪酸エステルの合計の配合量は、酸化安定

性向上及び風味、着色などの観点から純カテキン量及び純L-アスコルビン酸脂肪酸エステル量として油脂組成物中、0.01%以上が好ましく、0.015～0.14%がより好ましく、0.02～0.065%が特に好ましい。0.01%以上であれば、ジグリセリドの酸化安定性を著しく向上させることができ、また特に0.14%以下であれば、油脂組成物に不快味や着色が生じることがない。カテキンとL-アスコルビン酸脂肪酸エステルとの配合比は、併用効果をより高めるためには、0.03～3が好ましく、0.5～1.5が特に好ましい。なお、カテキン及びL-アスコルビン酸脂肪酸エステルをトリグリセリドに配合しても、両者は相乗的に作用せず、大きな酸化安定性効果は生じない。

【0013】

本発明の油脂組成物は、さらにシリコーンを含有することが好ましい。本発明組成物にシリコーンを加えることで、より一層酸化安定性が向上し、また、その油脂使用時における風味の劣化も改善させられる。シリコーンとしては、ジメチルポリシロキサン等の食添用消泡剤として知られる製剤（信越化学工業社製：KS-66，KS-69，KF-96，KM-72等、東芝シリコーン社製：THF450，TSA737等）が挙げられる。油脂組成物中の配合量は、0.3ppm以上が好ましく、1ppm～10ppmが特に好ましい。

【0014】

本発明の油脂組成物には、上記成分の他に、ブチルヒドロキシトルエン、ブチルヒドロキシアニソール、トコフェロール、L-プロリン等の抗酸化剤を配合することができる。

【0015】

本発明の油脂組成物は、ジグリセリド含有油脂にカテキン、L-アスコルビン酸脂肪酸エステル、必要に応じてその他の成分を添加し、適宜加熱、攪拌することにより得ることができる。またカテキン、L-アスコルビン酸脂肪酸エステルは、予めエタノール等の溶媒に溶解してから添加してもよい。かくして得られた油脂組成物は、長時間の加熱、保存に対して安定であり、例えば食用油等として有用である。本発明の油脂組成物は、一般の食用油に添加することで、その食用油の酸化安定性を向上させられる抗酸化製剤としても有用である。

【0 0 1 6】

【実施例】

実施例 1 ～ 6 及び比較例 1 ～ 9

表 1 及び表 2 に示す配合で、ジグリセリド又はトリグリセリドを主体とする油脂に、カテキン、L-アスコルビン酸パルミテート、ビタミン E、L-アスコルビン酸、又はシリコンを添加し、攪拌して各油脂組成物を製造した。

【0 0 1 7】

【表 1】

	実 施 例					
	1	2	3	4	5	6
大豆由来ジグリセリド高含有油脂 ¹⁾	100g	100g	100g	100g	—	100g
ナタネ由来ジグリセリド高含有油脂 ²⁾	—	—	—	—	100g	—
パーム油	—	—	—	—	—	—
大豆由来トリグリセリド高含有油脂 ³⁾	—	—	—	—	—	—
シリコン ⁴⁾	2ppm	2ppm	2ppm	—	—	—
L-アスコルビン酸パルミテート ⁵⁾	250ppm	250ppm	250ppm	300ppm	300ppm	250ppm
L-アスコルビン酸 ⁶⁾	—	—	—	—	—	—
カテキン ⁷⁾	50ppm	100ppm	200ppm	200ppm	200ppm	100ppm
ビタミン E ⁸⁾	—	—	—	—	—	—

1) トリグリセリド 13.0%、ジグリセリド 86.9%、モノグリセリド 0.1%

2) トリグリセリド 14.2%、ジグリセリド 85.7%、モノグリセリド 0.1%

3) 日清製油社製「大豆白絞油」

4) 信越化学工業社製「KS-66」

7) ワイエムシー社製「YK-85」（カテキン純度 85%）

4)～8)の数値は油脂に対する配合量を示す。

【0 0 1 8】

【表 2】

	比 較 例								
	1	2	3	4	5	6	7	8	9
大豆由来ジグリセリド高含有油脂 ¹⁾	100g	100g	100g	100g	100g	-	-	-	100g
ナタネ由来ジグリセリド高含有油脂 ²⁾	-	-	-	-	-	-	-	-	-
パーム油	-	-	-	-	-	-	-	100g	-
大豆由来トリグリセリド高含有油脂 ³⁾	-	-	-	-	-	100g	100g	-	-
シリコーン ⁴⁾	2ppm	2ppm	2ppm	2ppm	2ppm	2ppm	2ppm	2ppm	2ppm
Ｌ-アスコルビン酸 パルミチン酸 ⁵⁾	-	250ppm	-	-	300ppm	-	250ppm	-	-
Ｌ-アスコルビン酸 ⁶⁾	-	-	-	-	-	-	-	-	250ppm
カテキン ⁷⁾	-	-	50ppm	100ppm	-	-	100ppm	-	100ppm
ビタミンＥ ⁸⁾	-	-	-	-	2000ppm	-	-	-	-

1)～8) 表 1 と同じ

【 0 0 1 9 】

試験例 1

上記各油脂組成物について、以下の方法（ＣＤＭ試験：基準油脂試験法（日本油化学協会編）で誘導時間を測定した。すなわち、試料を反応容器で 1 2 0℃に加熱しながら、清浄空気を送り込み、酸化により生成した揮発性分解物を水中に

捕集し、水の導電率が急激に変化する折曲点までの時間（h r）を測定した。また油脂の風味及び外観を以下の評価基準で評価した。結果を表 3 に示す。

（風味）

- ◎：酸味、渋味等の不快味が全くなく、非常に優れている。
- ：不快味がほとんどなく、優れている。
- △：酸味、渋味等の不快味がややある。
- ×：不快味があり、風味が悪い。

（外観）

- ：不溶解物、着色がなく、良好である。
- ×：不溶解物又は着色があり、不良である。

また、これらの油脂を用いて 3 0 回繰り返し天ぷら調理を行い、3 0 回目の天ぷらの風味の評価を行った。結果を表 3 に示す。天ぷら調理の方法と評価方法は以下の通りである。

（天ぷら調理）

天ぷらの衣：卵／水／薄力粉＝5 0／1 5 0／1 0 0

器具、油量：3 0 cmの中華鍋に油を 6 0 0 g 入れる。

2 回目以降は減った油分を継ぎ足して調理を行った。

油温：1 8 0℃

種：1 回の調理につき、エビ 4 尾及びピーマン、レンコン、カボチャ、ナス各
4 切れ

（評価方法）

パネラー 1 0 名

（調理品の風味）

- ◎：油脂の劣化による不快味が全くなく、非常に優れている。
- ：油脂の劣化による不快味がほとんどなく、優れている。
- △：油脂の劣化による不快味がやや認められる。
- ×：油脂の劣化による不快味が認められ、風味が悪い。

【0 0 2 0】

【表 3】

	誘導時間 (hr)	油脂の風味	外 観	調理品の風味
実施例 1	8.4	◎	○	◎
実施例 2	13.5	◎	○	◎
実施例 3	20.7	○	○	◎
実施例 4	20.7	○	○	○
実施例 5	20.9	○	○	○
実施例 6	13.4	◎	○	○
比較例 1	3.5	◎	○	△
比較例 2	5.5	◎	○	△
比較例 3	5.4	◎	○	△
比較例 4	6.8	◎	○	△
比較例 5	6.9	◎	○	△
比較例 6	3.9	◎	○	△
比較例 7	7.4	◎	×	△
比較例 8	18.9	◎	○	○
比較例 9	4.7	◎	×	△

【 0 0 2 1 】

比較例 8 の油脂組成物は、トリグリセリド主体の硬化油脂であり、酸化安定性が非常に高かった。比較例 1 及び 6 の油脂組成物は、酸化安定性が非常に低かった。比較例 2 の油脂組成物は、比較例 1 の油脂組成物と比べて酸化安定性が向上したが、その効果は必ずしも十分ではなかった。比較例 3、4 の油脂組成物は、比較例 1 の油脂組成物と比べて酸化安定性が向上し、その傾向はカテキン配合量の増加に伴って大きくなったが、その効果は必ずしも十分ではなかった。比較例 2～4 は、カテキン、L-アスコルビン酸脂肪酸エステルを単独で配合しても、酸化安定性は十分に向上しないことを示している。比較例 5 の油脂組成物は、比較例 1 の油脂組成物と比べて酸化安定性が向上したが、その効果は必ずしも十分

ではなかった。比較例 7 の油脂組成物は、風味は良好であったが、カテキンと L-アスコルビン酸パルミテートが完全に溶解しないため、外観が悪く、また酸化安定性向上効果が低かった。比較例 7 は、トリグリセリド主体の油脂にカテキン及び L-アスコルビン酸パルミテートを配合しても、併用効果は十分でないことを示している。比較例 9 の油脂組成物は、L-アスコルビン酸が完全に溶解しないため、外観が不良であり、酸化安定性向上効果も低かった。

【0 0 2 2】

これに対し、実施例 1 ～ 6 の油脂組成物は、比較例 1 の油脂組成物と比べて、いずれも酸化安定性が飛躍的に向上した。特に実施例 3 ～ 5 の油脂組成物は、比較例 8 の油脂組成物よりも酸化安定性が優れていた。また比較例 1、2、4 及び実施例 2 より、カテキンと L-アスコルビン酸パルミテートを併用すると、両成分が相乗的に作用して、ジグリセリドを主体とする油脂組成物の酸化安定性を向上させることが明らかである。また実施例 1 ～ 6 の油脂組成物は、いずれも風味、外観が優れていた。

【0 0 2 3】

【発明の効果】

本発明の油脂組成物は、長時間加熱、保存した場合にも、酸化し難く、また風味、外観も優れたものである。したがって、特に業務用等の食品素材として有用である。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 酸化安定性、及び風味、外観に優れた、ジグリセリドを含有する油脂組成物の提供。

【解決手段】 ジグリセリド含量が 1 5 重量%以上の油脂、L-アスコルビン酸脂肪酸エステル及びカテキンを含有する油脂組成物。

【選択図】 なし

特願平 1 1 - 1 6 9 4 0 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 0 9 1 8]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 4 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都中央区日本橋茅場町 1 丁目 1 4 番 1 0 号

氏 名

花王株式会社